

特許協力条約

PCT

特許性に関する国際予備報告（特許協力条約第二章）

MAILED 13 OCT 2005
WIPO PCT

（法第 12 条、法施行規則第 56 条）
〔PCT36 条及び PCT 規則 70〕

出願人又は代理人 の書類記号 RX03P10PCT	今後の手続きについては、様式 PCT/IPEA/416 を参照すること。	
国際出願番号 PCT/JP2004/008312	国際出願日 (日.月.年) 14.06.2004	優先日 (日.月.年) 18.06.2003
国際特許分類 (IPC) Int.Cl. ⁷ H01F1/053, 1/08, 41/02		
出願人（氏名又は名称） 独立行政法人科学技術振興機構		

1. この報告書は、PCT35 条に基づきこの国際予備審査機関で作成された国際予備審査報告である。
法施行規則第 57 条 (PCT36 条) の規定に従い送付する。

2. この国際予備審査報告は、この表紙を含めて全部で 4 ページからなる。

3. この報告には次の附属物件も添付されている。

a. 附属書類は全部で 5 ページである。

振正されて、この報告の基礎とされた及び／又はこの国際予備審査機関が認めた訂正を含む明細書、請求の範囲及び／又は図面の用紙 (PCT 規則 70.16 及び実施細則第 607 号参照)

第 I 欄 4. 及び補充欄に示したように、出願時における国際出願の開示の範囲を超えた補正を含むものとこの国際予備審査機関が認定した差替え用紙

b. 電子媒体は全部で _____ (電子媒体の種類、数を示す)。
配列表に関する補充欄に示すように、コンピュータ読み取り可能な形式による配列表又は配列表に関連するテーブルを含む。 (実施細則第 802 号参照)

4. この国際予備審査報告は、次の内容を含む。

第 I 欄 国際予備審査報告の基礎
 第 II 欄 優先権
 第 III 欄 新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての国際予備審査報告の不作成
 第 IV 欄 発明の単一性の欠如
 第 V 欄 PCT35 条(2)に規定する新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての見解、それを裏付けるための文献及び説明
 第 VI 欄 ある種の引用文献
 第 VII 欄 国際出願の不備
 第 VIII 欄 国際出願に対する意見

国際予備審査の請求書を受理した日 21.01.2005	国際予備審査報告を作成した日 03.10.2005
名称及びあて先 日本国特許庁 (IPEA/JP) 郵便番号 100-8915 東京都千代田区霞が関三丁目 4 番 3 号	特許庁審査官 (権限のある職員) 菊地 聖子 電話番号 03-3581-1101 内線 3565 5R 3142

第I欄 報告の基礎

1. この国際予備審査報告は、下記に示す場合を除くほか、国際出願の言語を基礎とした。

この報告は、_____語による翻訳文を基礎とした。
それは、次の目的で提出された翻訳文の言語である。

PCT規則12.3及び23.1(b)にいう国際調査

PCT規則12.4にいう国際公開

PCT規則55.2又は55.3にいう国際予備審査

2. この報告は下記の出願書類を基礎とした。（法第6条（PCT第14条）の規定に基づく命令に応答するために提出された差替え用紙は、この報告において「出願時」とし、この報告に添付していない。）

出願時の国際出願書類

明細書

第 1-3, 6-19 ページ、出願時に提出されたもの
第 4, 4/1, 5, 5/1 ページ*、21.01.2005 付けて国際予備審査機関が受理したもの
第 _____ ページ*、_____ 付けて国際予備審査機関が受理したもの

請求の範囲

第 2, 3, 5 項、出願時に提出されたもの
第 _____ 項*、PCT第19条の規定に基づき補正されたもの
第 1, 4 項*、21.01.2005 付けて国際予備審査機関が受理したもの
第 _____ 項*、_____ 付けて国際予備審査機関が受理したもの

図面

第 1-6 ページ/図、出願時に提出されたもの
第 _____ ページ/図*、_____ 付けて国際予備審査機関が受理したもの
第 _____ ページ/図*、_____ 付けて国際予備審査機関が受理したもの

配列表又は関連するテーブル

配列表に関する補充欄を参照すること。

3. 補正により、下記の書類が削除された。

明細書 第 _____ ページ
 請求の範囲 第 _____ 項
 図面 第 _____ ページ/図
 配列表（具体的に記載すること）
 配列表に関するテーブル（具体的に記載すること） _____

4. この報告は、補充欄に示したように、この報告に添付されかつ以下に示した補正が出願時における開示の範囲を超えてされたものと認められるので、その補正がされなかつたものとして作成した。（PCT規則70.2(c)）

明細書 第 _____ ページ
 請求の範囲 第 _____ 項
 図面 第 _____ ページ/図
 配列表（具体的に記載すること）
 配列表に関するテーブル（具体的に記載すること） _____

* 4. に該当する場合、その用紙に "superseded" と記入されることがある。

第V欄 新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての法第12条（PCT35条(2)）に定める見解、それを裏付ける文献及び説明

1. 見解

新規性 (N)	請求の範囲	1 - 5	有
	請求の範囲		無
進歩性 (I S)	請求の範囲		有
	請求の範囲	1 - 5	無
産業上の利用可能性 (I A)	請求の範囲	1 - 5	有
	請求の範囲		無

2. 文献及び説明 (PCT規則70.7)

文献1 : JP 62-74048 A (住友特殊金属株式会社)
1987.04.04, 全文, 第1図 (ファミリーなし)

文献2 : JP 4-119604 A (富士電気化学株式会社)
1992.04.21, 全文, 第1-7図 (ファミリーなし)

文献3 : JP 7-122414 A (いすゞ自動車株式会社)
1995.05.12, 全文, 第1-2図 (ファミリーなし)

請求の範囲1-5

文献1には、Fe-B-R系永久磁石材料において、高保磁力を出現させる粒界相を焼結磁石体表面の結晶群上に、最適な厚みで粒界相を設けるために、厚み15μm以下のDy, Ho, Tbなどを薄膜層を形成し、熱処理する点が記載されている。

新たな文献2には、Nd2Fe14Bを主相1とし、これをNdリッチ相2やBリッチ相3が取り囲んでいるニュークリエーション型磁石において、主相1を取り囲むNdリッチ相2との界面が保磁力を発生させる点、焼結型Nd-Fe-B系永久磁石バルク体に、DyやPrを含む組成物を平均膜厚0.5μmとなるように添加又はコーティングし、400~900°Cで熱処理すると、DyやPrが内部に浸透してNdリッチ相2の欠け部分を補う点が記載されている。

新たな文献3には、Nd-Fe-B系アモルファス急冷リボン粉末において、リボン状の非晶質粉末間のDy拡散層の幅に応じて保磁力が変化する点、及び、保磁力は拡散層の幅が0.4~0.8μmの場合に大きくなり、この範囲の拡散層を得るためにCo-Dy合金粉末をアモルファス急冷リボン粉末に対して1~20wt%の範囲で添加する点が記載されている。すなわち、Dy成分を1~20wt%程度添加し

補充欄

いずれかの欄の大きさが足りない場合

第 V.2 欄の続き

て、Dy拡散層を高保磁力が得られる厚みとすることが記載されている。

そして、Dy, Tbが表面に拡散したR-Fe-B系永久磁石として、文献1に記載された、高保磁力を出現させる粒界相を設けるために、Dy, Ho, Tbなどの薄膜層を形成して熱処理する際に、文献2に記載された、400～900°Cで熱処理してDy等によりNdリッチ相の欠け部分を補うこと、及び、文献3に記載された、Dy成分を1～20wt%程度添加し、高保磁力が得られる厚みのDy拡散層を得る点は、当該技術分野の専門家にとっては容易に想到し得たことである。

なお、文献1に記載された発明に、文献2、3に記載された発明を適用したものは、本願の明細書の実施例より、本願発明と同様の磁石材料及び製造方法を適用していることから、本願発明と同様の磁気特性を有するものと認められる。

ロン以下の厚さの均一で薄いNdリッチ粒界相が取り囲んでいる。核発生型の磁石では、減磁界(demagnetizing field)が加わったときの逆磁区の発生をいかに抑止するかが保磁力の大小を決めるため、逆磁区の核となりやすい不純物や不均一な組織を排除する必要がある。例えば、文献 D.Givord et al., J.Appl.Phys., 60 (1986) 3263において、逆磁区は磁石内部の結晶粒界の乱れと磁石表面の酸化や機械的損傷によって発生し、特に表面の影響が大きいことが指摘されている。また、実際に焼結磁石を機械加工によって裁断して磁石厚さをおよそ1mm以下にした場合に、保磁力が著しく低下することが良く知られている。

[0015] そこで、本発明では、希少なDy等の希土類元素含有量を節減しても高保磁力、又は高残留磁束密度が得られることを特徴とする高性能な希土類磁石を提供することを目的とする。

課題を解決するための手段

[0016] 焼結磁石の磁気特性の改良には最終製品を得るために所定の形状寸法とするため機械加工などを済ませた磁石に対して、特性向上の技術を付加するのが合理的な解決法であり、既に、本発明者らは、最終磁石製品の表面に希土類金属を成膜して拡散することにより、磁気特性を向上させる技術に関する発明を特許出願した（特願2003-96866号）。

[0017] 本発明者らは、さらに技術内容を詳細に吟味した結果、従来の焼結磁石では得られない保磁力を、Dy等のわずかな含有量で実現できるか、又は従来と同等のDy含有量においては残留磁束密度を向上させることができる手段を見出した。この手段により、残留磁束密度の低下を抑制して最大エネルギー積の大幅な向上を図ることができた。

[0018] 本発明者らは、Nd-Fe-B系希土類磁石の保磁力機構を基に、焼結磁石の結晶組織と磁石に含有されるDy等の元素の役割について詳細に実験調査を重ねた結果、Dy等の希土類金属を磁石内部側に薄く、表面側に濃く分布させることにより、磁石中のDy等の希土類金属を有効活用した高性能希土類磁石の開発に成功した。

[0019] すなわち、本発明は、(1) 主結晶の間に希土類元素リッチな粒界層を有する磁石表面からのM元素（但し、Mは、Pr, Dy, Tb, Hoから選ばれる希土類元素の一種又

は二種以上) の拡散により希土類元素リッチ相と反応した、M元素が富化した結晶粒

界層を有し、保磁力 H_{cj} と磁石全体に占めるM元素含有量が下記の式で表されるこ
とを特徴とする、希土類一鉄一ホウ素系磁石、である。

[0020] $H_{cj} \geq 1 + 0.2 \times M$ (ただし、 $0.05 \leq M \leq 1.0$)
ただし、 H_{cj} ：保磁力、単位 (MA/m)、M：磁石全体に占めるM元素含有量 (質量%)

また、本発明は、(2) 残留磁束密度 Br と保磁力 H_{cj} が下記の式で表されることを特
徴とする、上記(1)の希土類一鉄一ホウ素系磁石、である。

[0021] $Br \geq 1.68 - 0.17 \times H_{cj}$
ただし、 Br ：残留磁束密度、単位 (T)
また、本発明は、(3) 希土類一鉄一ホウ素系磁石が、粉末成形と焼結法によって製
作される磁石、又は粉末成形と熱間塑性加工によって製作される磁石、であって、主
結晶の間に希土類元素リッチな粒界層を有する磁石であることを特徴とする上記(1)
又は(2)の希土類一鉄一ホウ素系磁石、である。

[0022] さらに、本発明は、(4) 主結晶の間に希土類元素リッチな粒界層を有する磁石を減圧
槽内に支持し、該減圧槽内で物理的手法によって蒸気又は微粒子化したM元素 (但し、M
は、Pr, Dy, Tb, Hoから選ばれる希土類元素の一種又は二種以上) 又はM元素を含
む合金を、該磁石の表面の全部又は一部に飛来させて成膜し、かつ該磁石の最表面に露出し
ている結晶粒子の半径に相当する深さ以上に該磁石内部にM元素を磁石表面から拡散浸
透させることによって、希土類元素リッチ相と反応させ、M元素が富化された結晶粒界層
を形成することを特徴とする上記(1)ないし(3)のいずれかの希土類一鉄一ホウ素
系磁石の製造方法、である。

[0023] また、本発明は、(5) 結晶粒界層のM元素の濃度を磁石の表面側ほど高濃度に富
化させることを特徴とする上記(4)の希土類一鉄一ホウ素系磁石の製造方法、である

[0024] 本発明では、M元素 (但し、Mは、Pr, Dy, Tb, Hoから選ばれる希土類元素の
一種又は二種以上) を表面に成膜して拡散することにより、M元素を結晶粒界部に富
化させることによりDy等の希土類金属を磁石内部側に薄く、表面側に濃く分布させ
ことができる。

[0025] Nd-Fe-B系焼結磁石において、大きな保磁力を得るために異方性磁界の大

請求の範囲

[1] (補正後) 主結晶の間に希土類元素リッチな粒界層を有する磁石表面からのM元素(但し、Mは、Pr, Dy, Tb, Hoから選ばれる希土類元素の一種又は二種以上)の拡散により希土類元素リッチ相と反応した、M元素が富化した結晶粒界層を有し、保磁力Hcjと磁石全体に占めるM元素含有量が下記の式で表されることを特徴とする、希土類一鉄一ホウ素系磁石。

$$Hcj \geq 1 + 0.2 \times M \quad (\text{ただし, } 0.05 \leq M \leq 10)$$

ただし、Hcj:保磁力、単位(MA/m)、M:磁石全体に占めるM元素含有量(質量%)

[2] 残留磁束密度Brと保磁力Hcjが下記の式で表されることを特徴とする、請求項1記載の希土類一鉄一ホウ素系磁石。

$$Br \geq 1.68 - 0.17 \times Hcj$$

ただし、Br:残留磁束密度、単位(T)

[3] 希土類一鉄一ホウ素系磁石が、粉末成形と焼結法によって製作される磁石、又は粉末成形と熱間塑性加工によって製作される磁石、であって、主結晶の間に希土類元素リッチな粒界層を有する磁石であることを特徴とする請求項1又は2記載の希土類一鉄一ホウ素系磁石。

[4] (補正後) 主結晶の間に希土類元素リッチな粒界層を有する磁石を減圧槽内に支持し、該減圧槽内で物理的手法によって蒸気又は微粒子化したM元素(但し、Mは、Pr, Dy, Tb, Hoから選ばれる希土類元素の一種又は二種以上)又はM元素を含む合金を、該磁石の表面の全部又は一部に飛来させて成膜し、かつ該磁石の最表面に露出している結晶粒子の半径に相当する深さ以上に該磁石内部にM元素を磁石表面から拡散浸透させることによって、希土類元素リッチ相と反応させ、M元素が富化された結晶粒界層を形成することを特徴とする請求項1ないし3のいずれかに記載の希土類一鉄一ホウ素系磁石の製造方法。

[5] 結晶粒界層のM元素の濃度を磁石の表面側ほど高濃度に富化させることを特徴とする請求項4記載の希土類一鉄一ホウ素系磁石の製造方法。